

DIALOG(R)File 347:JAPIO

(c) 2002 JPO & JAPIO. All rts. reserv.

05906152    \*\*Image available\*\*

ORGANIC ACTIVE ELECTROLUMINESCENT LIGHT EMITTING DEVICE

PUB. NO.:    10-189252 [JP 10189252 A]

PUBLISHED:    July 21, 1998 (19980721)

INVENTOR(s):    HOSOKAWA CHISHIO

APPLICANT(s): IDEMITSU KOSAN CO LTD [330172] (A Japanese Company or Corporation), JP (Japan)

APPL. NO.:    08-357028 [JP 96357028]

FILED:    December 26, 1996 (19961226)

INTL CLASS:    [6] H05B-033/26; H01L-029/786; H01L-021/336; H05B-033/10

JAPIO CLASS:    43.4 (ELECTRIC POWER -- Applications); 42.2 (ELECTRONICS -- Solid State Components)

JAPIO KEYWORD: R002 (LASERS); R004 (PLASMA); R007 (ULTRASONIC WAVES); R044 (CHEMISTRY -- Photosensitive Resins); R096 (ELECTRONIC MATERIALS -- Glass Conductors); R100 (ELECTRONIC MATERIALS -- Ion Implantation)

#### ABSTRACT

**PROBLEM TO BE SOLVED:** To provide an organic active electroluminescent light emitting device of a large numerical aperture in which generation of image defects can be effectively prevented, and in which high quality image display can be realized.

**SOLUTION:** In an organic active electroluminescent light emitting device in which plural thin film transistors(TFT) 2 and plural organic electroluminescence elements 3 disposed to correspond to the TFT's 2 to be driven by the TFT's 2 are disposed on a substrate 1, a flattened layer-to-layer insulation film 4 is disposed between the TFT 2 and a lower electrode 31 of the organic electroluminescence element 3, and a drain terminal of the TFT 2 and the lower electrode 3 of the organic electroluminescence element 3 are electrically connected to each other through a contact hole 41 provided in the layer-to-layer insulation film 4.

DIALOG(R)File 345:Inpadoc/Fam.& Legal Stat

(c) 2002 EPO. All rts. reserv.

14587121

Basic Patent (No,Kind,Date): JP 10189252 A2 980721 <No. of Patents: 001>

ORGANIC ACTIVE ELECTROLUMINESCENT LIGHT EMITTING DEVICE (English)

Patent Assignee: IDEMITSU KOSAN CO

Author (Inventor): HOSOKAWA CHISHIO

IPC: \*H05B-033/26; H01L-029/786; H01L-021/336; H05B-033/10

CA Abstract No: \*129(14)181916D; 129(14)181916D

Derwent WPI Acc No: \*G 98-451660; G 98-451660

Language of Document: Japanese

Patent Family:

Patent No	Kind	Date	Applic No	Kind	Date
JP 10189252	A2	980721	JP 96357028	A	961226 (BASIC)

Priority Data (No,Kind,Date):

JP 96357028 A 961226

(19) 日本国特許庁 (J P)

# (12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開平10-189252

(43) 公開日 平成10年(1998) 7月21日

(51) Int. Cl. <sup>6</sup>

識別記号

F I

H05B 33/26

H05B 33/26

H01L 29/786

33/10

21/336

H01L 29/78

612 Z

H05B 33/10

審査請求 未請求 請求項の数 6 F D (全19頁)

(21) 出願番号

特願平8-357028

(22) 出願日

平成8年(1996)12月26日

(71) 出願人 000183646

出光興産株式会社

東京都千代田区丸の内3丁目1番1号

(72) 発明者 細川 地潮

千葉県袖ヶ浦市上泉1280番地

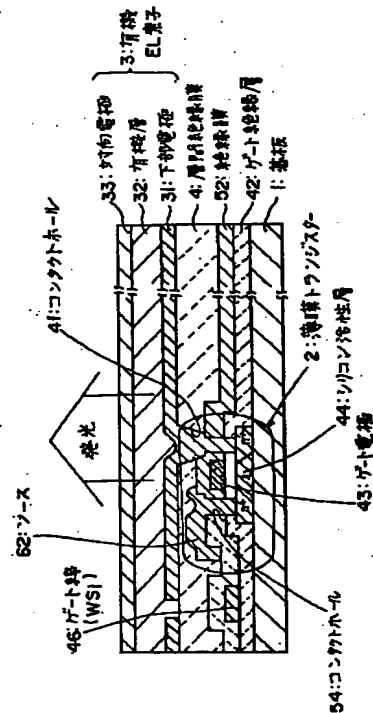
(74) 代理人 弁理士 渡辺 喜平 (外1名)

(54) 【発明の名称】 有機アクティブEL発光装置

(57) 【要約】

【課題】 開口率が大きく、かつ画像欠陥の発生を有効に防止して、高品質の画像表示が可能な有機アクティブEL発光装置を提供する。

【解決手段】 基板1上に、複数の薄膜トランジスタ(TFT)2と、このTFTによって駆動される、TFTに対応して配設された複数の有機EL素子3とを有する有機アクティブEL発光装置において、TFT2と有機EL素子3の下部電極31との間に、平坦化された層間絶縁膜4を配設し、かつTFT2のドレイン端子と有機EL素子3の下部電極31とを、層間絶縁膜4に設けられたコンタクトホール41を介して電気的に接続する。



## 【特許請求の範囲】

【請求項1】 基板上に、複数の薄膜トランジスタ（TFT）と、このTFTによって駆動される、TFTに対応して配設された複数の有機EL素子とを有する有機アクティブEL発光装置において、

TFTと有機EL素子の下部電極との間に、平坦化された層間絶縁膜が配設され、かつTFTの端子と有機EL素子の下部電極とが、層間絶縁膜に設けられたコンタクトホールを介して電氣的に接続されてなることを特徴とする有機アクティブEL発光装置。

【請求項2】 前記有機EL素子の対向電極が、透明である請求項1記載の有機アクティブEL発光装置。

【請求項3】 その開口率（実際に発光する部分が画素中に占める割合）が、75%以上である請求項1または2記載の有機アクティブEL発光装置。

【請求項4】 基板上に、XYマトリックス状に配設された複数の走査電極線および信号電極線と、この走査電極線および信号電極線の近傍に配設された電気スイッチとを有し、この電気スイッチが走査信号パルスおよび信号パルスでスイッチ動作を行うことにより、この電気スイッチに結合された単位画素中の有機EL素子が発光または発光停止して画像表示を行う有機アクティブEL発光装置において、電気スイッチが、発光画素を選択する薄膜トランジスタ（第一のトランジスタ）、および有機EL素子を駆動する薄膜トランジスタ（第二のトランジスタ）のそれぞれ一つ以上から形成されてなり、かつ第一および第二のトランジスタと有機EL素子の下部電極との間に、平坦化された層間絶縁膜が配設され、さらに、第二のトランジスタのドレインと、有機EL素子の下部電極とが電氣的に接続されてなることを特徴とする有機アクティブEL発光装置。

【請求項5】 前記第一および第二のトランジスタの活性層が、ポリシリコンから形成されてなる請求項4記載の有機アクティブEL発光装置。

【請求項6】 前記有機EL素子の対向電極が、透明である請求項4または5記載の有機アクティブEL発光装置。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

【発明の属する技術分野】 本発明は、有機アクティブEL発光装置に関する。さらに詳しくは、民生用、工業用の表示機器、カラーディスプレイ等に好適に用いられる有機アクティブEL発光装置に関する。

## 【0002】

【従来の技術】 従来、有機EL発光装置（ディスプレイ）においては、XYマトリックスにおいて単純駆動をさせ画像表示を行う技術が知られている（特開平2-37385号公報、特開平3-233891号公報など）。しかし、このような単純駆動では、線順次駆動を行うので、走査数が数百本と多い場合には、要求される

瞬間輝度が観察される輝度の数百倍となるため、下記問題があった。

【0003】（1）駆動電圧が高くなる。電圧は直流定常電圧下の場合の通常2〜3倍以上となるため効率が低下する。従って消費電力が大きくなる。

（2）瞬間的に流れる電流量が数百倍となるため、有機発光層が劣化しやすくなる。

（3）（2）と同様に通電電流が非常に大きいため、電極配線の電圧降下が問題となる。

10 【0004】 上記の（1）〜（3）を解決する手法として、下記のアクティブマトリックス駆動が提案されている。すなわち、蛍光体として無機物であるZnSを用い、さらにアクティブマトリックス駆動を行うディスプレイが開示されている（米国特許第4143297号）。しかし、この技術においては、無機蛍光体を用いるため駆動電圧が100V以上と高く問題となっていた。同様な技術は、IEEE Trans Electron Devices, 802 (1971) にも記載されている。一方、有機蛍光体を用いアクティブマトリックス駆動を行うディスプレイも最近、多数開発されている（特開平7-122360号公報、特開平7-122361号公報、特開平7-153576号公報、特開平8-54836号公報、特開平7-111341号公報、特開平7-312290号公報、特開平8-109370号公報、特開平8-129359号公報、特開平8-241047号公報および特開平8-227276号公報など）。上記の技術は、有機蛍光体を用いることにより駆動電圧が10V以下と大幅に低電圧化し、高効率な有機蛍光体を用いる場合には効率は3 lm/w〜15 lm/wの範囲で極めて高効率であること、また、単純駆動に比べて高精細ディスプレイの駆動電圧が1/2〜1/3となり、消費電力が低減できること等の極めて優れた特徴があったが、下記の点が問題となっていた。

【0005】（1）通常、透光性の基板上に、 $\alpha$ -Si、ポリシリコンなどからなるTFT (thin film transistor) が、画素一つに対して少なくとも一つまたは二つ設けられ、さらにTFTを選択してONするために走査電極線および信号電極線が前記基板上に多数設けられていた。TFT素子と有機EL素子とを絶縁するためにTFT上には、窒化シリコンまたは酸化シリコンなどからなる絶縁膜が設けられている。しかしながら、TFTの厚さは、ゲートおよびドレイン、ソース電極を含め0.2  $\mu$ m〜1  $\mu$ mとなり凹凸があるので、これを避けて下部のEL電極を形成する必要があり、画素中に非発光部分が生ずるのを避けることができなかった。透光性基板側より光を取り出す場合には、さらに走査電極線および信号電極線も光を遮るため、画素の開口率（実際に発光する部分が画素中に占める割合）が小さかった。例えば特開平7-122362

号公報に示されたものでは開口率がわずか56%であり、非発光部分がめだち良好な画像が得られないという問題があった。同時に特開平8-241047号公報の図3に示されたものでは、高い輝度が得られにくいという問題もあった。

【0006】(2) また、特開平8-241047号公報の図3に示されたもののよう、TFTを覆う絶縁膜の開口部に下部EL電極を形成する場合、絶縁膜のパターン端を良好にエッチングするのは技術的に困難であるため、エッチング残りなどの不具合が生じやすく、発光欠陥が発生し問題となっていた。

【0007】(3) 一方、基板側の反対側から光を取り出す場合には、開口率が大きくなり良好な画像が得られる可能性がある。しかしながら通常は、TFTを覆う層間絶縁膜が平坦化されていないため、TFTの凹凸により上部に形成される有機EL素子の欠陥が多発し問題となる。有機EL素子は、有機層が $0.05\mu\text{m}\sim0.2\mu\text{m}$ と薄層であるので下部の凹凸により容易に欠陥が生成される。このため、特開平8-54836号公報の図1および図2に示されたもののよう、走査電極線、信号電極線、TFTが形成されている部分以外に有機EL素子を形成するのが通常であった。従って、従来のものの開口率は小さくならざるを得なかった。

【0008】従来の技術についてさらに具体的に説明する。図5は、従来技術における有機TFT-ELの回路図である。基板上にゲートライン(走査電極線)とソースライン(信号電極線)が複数形成されておりXYマトリックスをなしている。このゲートライン、ソースラインには一画素あたり2個のTFT21、22が図5に示すように連結しており、さらに、一画素中には第2のTFT22のゲートを定電位にホールドするためのコンデンサー23が形成されており、この第2のTFT22により、図において斜線で示される有機EL素子3が駆動される。

【0009】図中A-A'線における画素の断面図を図6に示す。第2のTFT22は図7に示すようにポリシリコンを活性層として形成されており、ポリシリコンアイランド71の厚さは200nm、ゲート $\text{SiO}_2$ の厚さは100nm、ポリシリコンゲート73の厚さは300nm、ポリシリコンゲートを囲む $\text{SiO}_2$ の厚さは500nmである。図からわかるように、ポリシリコンアイランド71およびポリシリコンゲート73の厚さ分だけTFT部分は凹凸を形成する。凸部は500~600nmだけ突出する。従って、TFT上に有機EL素子を形成する意図があったとしても、この凹凸により下部電極、有機層および対向電極の断線が生じやすく良好な有機ELの発光画素を形成することができない。また、この従来技術では、下部電極であるITO31から、すなわち基板1側から光を取り出すことになる。このためTFT、ゲートライン、ソースラインが光を遮るため画素

の開口率が小さくなるという問題があった。

【0010】また、他の従来の技術としては、図8に示すように、上部に対向電極である正孔注入電極81(通常は透明である)を設けた技術がある。しかしながら、この技術においてもTFT部分の凹凸があるため、この部分を避けて電子注入電極82が形成され、発光する画素が形成されている。また、ゲート電極83、ソース電極84およびドレイン電極85上の凹凸もこのままでは問題となるため、有機層32はこの箇所を避けて形成されている。

【0011】

【発明が解決しようとする課題】本発明は、上述の問題に鑑みなされたものであり、開口率が大きく、かつ画像欠陥の発生を有効に防止して、高品質の画像表示が可能な有機アクティブEL発光装置を提供することを目的とする。

【0012】

【課題を解決するための手段】上記目的を達成するため、本発明によれば、基板上に、複数の薄膜トランジスタ(TFT)と、このTFTによって駆動される、TFTに対応して配設された複数の有機EL素子とを有する有機アクティブEL発光装置において、TFTと有機EL素子の下部電極との間に、平坦化された層間絶縁膜が配設され、かつTFTの端子と有機EL素子の下部電極とが、層間絶縁膜に設けられたコンタクトホールを介して電気的に接続されてなることを特徴とする有機アクティブEL発光装置が提供される。

【0013】また、その好ましい態様として、前記有機EL素子の対向電極が、透明である有機アクティブEL発光装置が提供される。

【0014】また、その好ましい態様として、その開口率(実際に発光する部分が画素中に占める割合)が、75%以上である有機アクティブEL発光装置が提供される。

【0015】また、基板上に、XYマトリックス状に配設された複数の走査電極線および信号電極線と、この走査電極線および信号電極線の近傍に配設された電気スイッチとを有し、この電気スイッチが走査信号パルスおよび信号パルスでスイッチ動作を行うことにより、この電気スイッチに結合された単位画素中の有機EL素子が発光または発光停止して画像表示を行う有機アクティブEL発光装置において、電気スイッチが、発光画素を選択する薄膜トランジスタ(第一のトランジスタ)、および有機EL素子を駆動する薄膜トランジスタ(第二のトランジスタ)のそれぞれ一つ以上から形成されており、かつ第一および第二のトランジスタと有機EL素子の下部電極との間に、平坦化された層間絶縁膜が配設され、さらに、第二のトランジスタのドレインと、有機EL素子の下部電極とが電気的に接続されてなることを特徴とする有機アクティブEL発光装置が提供され

る。

【0016】さらに、その好ましい態様として、前記第一および第二のトランジスタの活性層が、ポリシリコンから形成されてなる有機アクティブEL発光装置が提供される。

【0017】

【発明の実施形態】以下、本発明の実施形態を、図面を参照しつつ具体的に説明する。図1は、本発明の有機アクティブEL発光装置の一実施形態を模式的に示す断面図で、図3におけるA-A'線断面図である。図2は、本発明に用いられる有機EL素子の駆動回路を示す説明図である。図3は、本発明の有機アクティブEL発光装置の一実施形態を模式的に示す平面図である。図4は、本発明に用いられる薄膜トランジスタのポリシリコン層をアイランドにパターン化する過程を模式的に示す断面図である。

【0018】本発明の有機アクティブEL発光装置の一実施形態は、図1に示すように、基板1上に複数の薄膜トランジスタ(TFT)2と、このTFT2によって駆動される、TFT2に対応して配設された複数の有機EL素子3とを有し、TFT2と有機EL素子3の下部電極31との間に、平坦化された層間絶縁膜4が配設され、かつTFT2のドレイン端子と有機EL素子3の下部電極31とが、層間絶縁膜4に設けられたコンタクトホール41を介して電氣的に接続されている。

【0019】また、有機EL素子は、TFTによって以下のように駆動される。図2および図3に示すように、XYマトリックス状に配設された複数の走査電極線( $Y_1 \sim Y_{j..}$ )および信号電極線( $X_1 \sim X_{i..}$ )と、この電極線( $Y_1 \sim Y_{j..}$ )および( $X_1 \sim X_{i..}$ )近傍に配設された電気スイッチ(TFT2)とを有している。この電気スイッチは、第一のトランジスタ( $Tr1$ )21および第二のトランジスタ( $Tr2$ )22のそれぞれ以上から形成されている。この電気スイッチが走査信号パルスおよび信号パルスでスイッチ動作を行うことにより、この電気スイッチに結合された単位画素中の有機EL素子3が、発光または発光停止して、画像表示を行う。

【0020】なお、第一のトランジスタ( $Tr1$ )21は、発光画素を選択する。また、第二のトランジスタ( $Tr2$ )22は、有機EL素子を駆動する機能を有する。

【0021】また、前記層間絶縁膜4は、第一のトランジスタ( $Tr1$ )21および第二のトランジスタ( $Tr2$ )22と、有機EL素子3の下部電極31との間に配設され、さらに、第二のトランジスタ( $Tr2$ )のドレイン端子と、有機EL素子の下部電極31とが電氣的に接続されている。

【0022】以下、さらに具体的に説明する。本発明に用いられる有機EL素子3は、図2に示すようにアクテ

イブマトリックス回路によって駆動される。走査電極線(ゲート線)( $Y_1 \sim Y_{j..}$ )を介して伝達されるパルスと信号電極線( $X_1 \sim X_{i..}$ )を介して伝達されるパルスによって所望の第一のトランジスタ( $Tr1$ )21が選択され、共通電極線( $C_1 \sim C_{j..}$ )と第一のトランジスタ( $Tr1$ )21のソースとの間に形成されるコンデンサ23に電荷が充電される。これにより、第二のトランジスタ( $Tr2$ )22のゲートが一定電位となり、第二のトランジスタ( $Tr2$ )22はON状態となる。このON状態は、次にゲートパルスが伝達されるまでホールドされ第二のトランジスタ( $Tr2$ )22のドレイン端子に接続されている有機EL素子3の下部電極31に電流を供給しつづけることになる。

【0023】また、本発明においては、図1に示すように、薄膜のトランジスタ2(第一のトランジスタ( $Tr1$ )、第二のトランジスタ( $Tr2$ ))、およびゲート線( $Y_1 \sim Y_{j..}$ )、信号電極線( $X_1 \sim X_{i..}$ )上に層間絶縁膜4が設けられており、かつ、この層間絶縁膜4は平坦化されている。

【0024】また、有機EL素子3の下部電極31が層間絶縁膜4上に設けられており、この層間絶縁膜4に形成されたコンタクトホール41を介して、第二のトランジスタ( $Tr2$ )のドレイン端子と下部電極31とが電氣的に接続している。

【0025】さらに、この下部電極は、図3に示すように第一のトランジスタ( $Tr1$ )21、第二のトランジスタ( $Tr2$ )22、信号電極線、ゲート線46の上に設けられている。なお、図3中、一点鎖線で囲まれた部分が有機EL素子の下部電極31を示している。

【0026】以下、各構成要素について説明する。

#### 1. 基板

本発明に用いられる基板は、絶縁性であり、水晶またはガラスのような透明材料であることが好ましい。ここで、透明とは、有機アクティブEL発光装置における実際の使用に対して十分な光を透過する性質を有することを意味する。例えば、所望の周波数範囲で50%以上の光を透過するものは透明と考えられる。また、低温ガラスとは、約600℃以上の温度で融解または歪むガラスをいう。

#### 2. 薄膜トランジスタ

本発明において、薄膜トランジスタ(TFT)は有機EL素子の駆動のために用いられ、具体的には電気スイッチとして第一のトランジスタ( $Tr1$ )および第二のトランジスタ( $Tr2$ )のそれぞれ以上から形成される。この $Tr1$ および $Tr2$ の活性層は、図1において $n'/i/n'$ と示された部分であり、 $n'$ はN型にドーピングされた部位、 $i$ はドーピングされていない部位を示す。この活性層のドーピングがされた部位はP型にドーピングされたP'であっても良い。この活性層は、好ましくはポリシリコンで形成される。ポリシリコ

10

20

30

40

50

ンは、アモルファスSiに比べ通電に対し十分な安定性を示す。

【0028】他の好ましい材料としては、有機半導体を挙げることができる。チオフエンオリゴマー、ポリ(P-フェニレンビニレン)などがある。

【0029】ポリシリコンは、各種CVD法により積層しうるが、好ましくはプラズマCVD法により図4

(a)に示すように、 $\alpha$ -Siを積層する。

【0030】その後、図4(b)に示すように、KrF (248nm) レーザーなどのエキシマーレーザーによりアニール結晶化する(SID '96, Digest of technical papers P17~28)。 $\alpha$ -Siの好ましい膜厚は、40~200nmである。エキシマレーザーのアニールングとしては、基板温度100~300℃に維持するのが好ましく、100~300mJ/cm<sup>2</sup>のエネルギー量をもつレーザー光でアニール化するのが好ましい。

【0031】また、ポリシリコン層は、図4(c)に示すように、フォトリソグラフィによりアイランドにパターン化される。用いられる基板は水晶のような結晶材料であるが、好ましくは低温度ガラスのようなより高価でない材料である。ガラス基板が用いられるときにはTFTEの製造全体がガラスの熔融または歪みを回避し、能動領域内にドーパントの外側拡散(out-diffusion)を回避するために低プロセス温度で実施される。このようにしてガラス基板に対して全ての製造段階は1000℃以下、好ましくは600℃以下でなされなければならない。

【0032】次に、図4(d)に示すように、絶縁ゲート材料42がポリシリコンアイランド71上および絶縁基板1の表面にわたり積層される。絶縁材料は好ましくはプラズマ増強CVD(PECVD)または減圧CVD(LPCVD)のような化学蒸着(CVD)により積層される二酸化シリコンである。ゲート酸化物絶縁層の厚さは好ましくは約100~200nmである。基板温度としては250~400℃が好ましくさらに高品質の絶縁ゲート材料を得るためにはアニールを300~600℃で1~3hr程度施すのが好ましい。

【0033】次の段階では、図4(e)に示すように、ゲート電極43を蒸着またはスパッタリングで成膜する。好ましい膜厚は200~500nmである。

【0034】次に、図4(f)~(h)に示すように、ゲート電極43をパターンニングする。ただしここでA1ゲートを使用するときは、絶縁するために陽極酸化を2回にわたり行うのが好ましい。陽極酸化に関しては特公平8-15120号公報に詳細に開示されている。

【0035】次に、図4(i)に示すように、イオンドーピングによりn' またはp' の部位を形成する。別の方法としてはゲートとしてポリシリコンを用いる次の技術がある。この技術では図1に示すポリシリコンゲート

電極43はゲート絶縁層上に積層され、イオンインプラント後にソースとドレイン領域はポリシリコン領域内に形成されるようにポリシリコンアイランド上にフォトリソグラフィすることによりパターン化される。ゲート電極材料は好ましくはアモルファスシリコンから形成されたポリシリコンである。イオンインプラントは好ましくは砒素であるN型ドーパントで導電化される。ポリシリコンゲート電極はまたコンデンサーの底部電極として供される。このように製造はより複雑でなく、より高価でないものとすることができる。図1に示すゲートバス46は絶縁層上で適用され、パターン化される。ゲートバスは好ましくは珪素化タングステン(WSi)のような金属珪素化物である。これは金属珪素化物の面抵抗値が数 $\Omega/\square$ 以下にすることができるからである。

【0036】しかし、WSiなどの金属珪素化物に代えてAl合金、Al、Cr、W、Moなどの金属を用いても良い。このような場合、より低い面抵抗値が実現するメリットがある。また、ゲートとして、TaNを用いても良い。次の段階では、二酸化シリコン、窒化シリコン、ポリイミドなどで構成される絶縁膜を全体にわたり適用する。

【0037】次に、信号電極線および走査電極線を形成する。Al合金、Al、Cr、W、Moなどの金属線をフォトリソグラフィにより形成するとともに、Tr1、Tr2のドレイン、ソースなどのコンタクトは、上記絶縁膜を開口した箇所で行う。この絶縁膜は、図1の52の符号で示される。上記の内、SiO<sub>2</sub>は、例えばTEOS(テトラエトキシシラン)をガスとして基板温度250~400℃の間に設定しPECVDにより得ることができる。またECR-CVDで基板温度を100~300℃としても得ることができる。

### 【0038】3. 層間絶縁膜

本発明に用いられる平坦化された層間絶縁膜は、下記

(1) または(2)の方法で形成することができる。

(1) ポリイミドコーティング膜のスピンコートによる成膜

ポリイミドとしては市販のコーティング液を用いエッチングにより図1に示すコンタクトホール41を形成しドレイン接続部を開口する。さらに絶縁膜52、ゲート絶縁膜42をエッチングにて開口しドレインを露出させる。ポリイミドは平坦化された表面を与えるため好ましい一例である。

(2) プラズマエッチングによるエッチバック法

各種CVD法、プラズマCVD、PECVD(プラズマインハンスト CVD)、LPCVD(減圧CVD)法などによりシリカを好ましくは1 $\mu$ m~3 $\mu$ m成膜する。さらにポリマーコーティングを全面に行う。さらに反応性イオンエッチング(RIE)によりガス種をCF<sub>4</sub>と酸素の混合ガスとしエッチングを行う。エッチング膜厚は好ましくは0.5 $\mu$ m~2 $\mu$ mである。この方法

により平坦化された層間絶縁膜 ( $\text{SiO}_2$ ) を得ることができる。この方法には、シリカの他、PSG、BSG (リンシリカガラス、ボロンシリカガラス) を用いることもできるし、 $\text{Si}_3\text{N}_4$  などチッ化シリコン系化合物を用いることができる。

#### 【0039】4. 有機EL素子

本発明に用いられる有機EL素子においては、有機物層 (有機層) として、再結合領域および発光領域を少なくとも有するものが用いられる。この再結合領域および発光領域は、通常発光層に存在するため、本発明において、有機物層として発光層のみを用いてもよいが、必要に応じて、発光層以外に、例えば正孔注入層、電子注入層、有機半導体層、電子障壁層、付着改善層なども用いることができる。

【0040】次に本発明に用いられる有機EL素子の代表的な構成例を示す。もちろん、これに限定されるものではない。

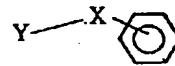
- ①透明電極 (陽極) / 発光層 / 電極 (陰極)
  - ②透明電極 (陽極) / 正孔注入層 / 発光層 / 電極 (陰極)
  - ③透明電極 (陽極) / 発光層 / 電子注入層 / 電極 (陰極)
  - ④透明電極 (陽極) / 正孔注入層 / 発光層 / 電子注入層 / 電極 (陰極)
  - ⑤陽極 / 有機半導体層 / 発光層 / 陰極
  - ⑥陽極 / 有機半導体層 / 電子障壁層 / 発光層 / 陰極
  - ⑦陽極 / 正孔注入層 / 発光層 / 付着改善層 / 陰極
- などの構造を挙げることができる。これらの中で、通常④の構成が好ましく用いられる。

#### 【0041】(4) - 1. 発光層

有機EL素子の発光材料は主に有機化合物であり、具体的には所望の色調により次のような化合物が挙げられる。まず、紫外域から紫色の発光を得る場合には、下記の一般式であらわされる化合物が挙げられる。

#### 【0042】

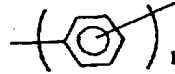
#### 【化1】



【0043】この一般式において、Xは下記化合物を示す。

#### 【0044】

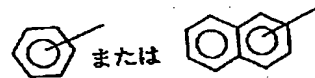
#### 【化2】



【0045】ここでnは、2、3、4または5である。また、Yは下記化合物を示す。

#### 【0046】

#### 【化3】



【0047】上記化合物のフェニル基、フェニレン基、ナフチル基に炭素数1~4のアルキル基、アルコキシ基、水酸基、スルホニル基、カルボニル基、アミノ基、ジメチルアミノ基またはジフェニルアミノ基等が単独または複数置換したものであってもよい。また、これらは互いに結合し、飽和5員環、6員環を形成してもよい。また、フェニル基、フェニレン基、ナフチル基にパラ位で結合したものが、結合性がよく平滑な蒸着膜の形成のために好ましい。具体的には以下の化合物である。特に、p-クォーターフェニル誘導体、p-クイंकフェニル誘導体が好ましい。

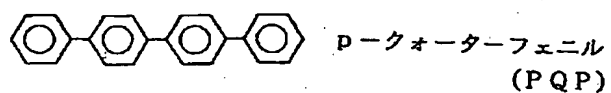
#### 【0048】

#### 【化4】

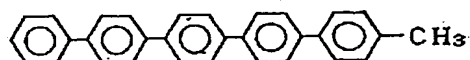


11

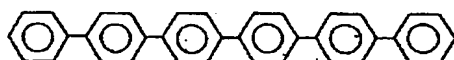
(1)



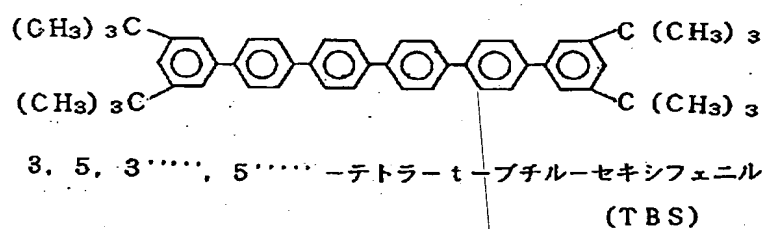
(2)



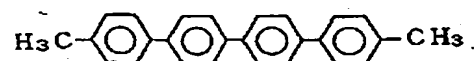
(3)



(4)



(5)

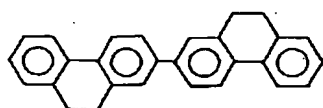


【0049】

【化5】

13

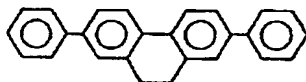
(6)



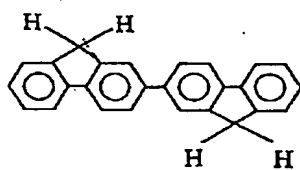
【0 0 5 0】

【化 6】

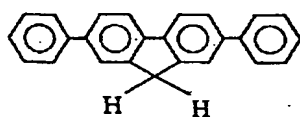
(7)



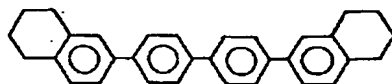
(8)



(9)

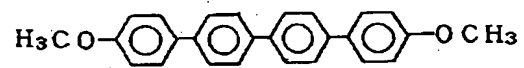


(10)

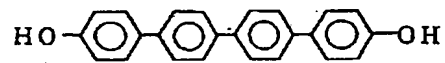


15

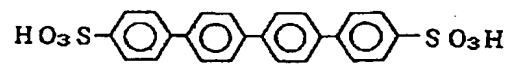
( 1 1 )



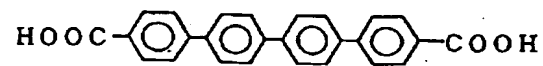
( 1 2 )



( 1 3 )



( 1 4 )

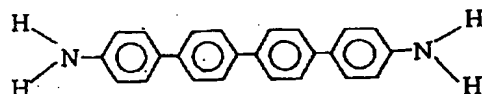


【 0 0 5 1 】

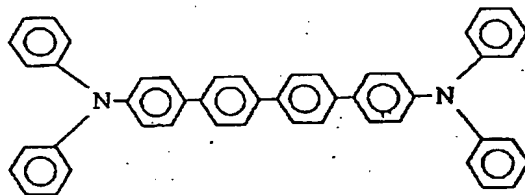
【 化 7 】

16

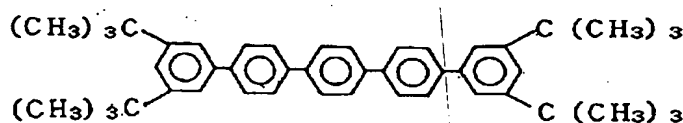
(15)



(16)



(17)

3, 5, 3', 5'-テトラ-*t*-ブチル-*p*-クインクフェニル

(TBQ)

【0052】次に、青色から緑色の発光を得るためには、例えば、ベンゾチアゾール系、ベンゾイミダゾール系、ベンゾオキサゾール系等の蛍光増白剤、金属キレート化オキシノイド化合物、スチリルベンゼン系化合物を挙げることができる。

【0053】具体的に化合物名を示せば、例えば、特開昭59-194393号公報に開示されているものを挙げる事ができる。その代表例としては2, 5-ビス(5, 7-ジ-*t*-ベンチル-2-ベンゾオキサゾリル)-1, 3, 4-チアジアゾール、4, 4'-ビス(5, 7-*t*-ベンチル-2-ベンゾオキサゾリル)スチルベン、4, 4'-ビス[5, 7-ジ-(2-メチル-2-ブチル)-2-ベンゾオキサゾリル]スチルベン、2, 5-ビス(5, 7-ジ-*t*-ベンチル-2-ベンゾオキサゾリル)チオフエン、2, 5-ビス[5- $\alpha$ ,  $\alpha$ -ジメチルベンジル-2-ベンゾオキサゾリル]チオフエン、2, 5-ビス[5, 7-ジ-(2-メチル-2-ブチル)-2-ベンゾオキサゾリル]-3, 4-ジオフェニルチオフエン、2, 5-ビス(5-メチル-2-ベンゾオキサゾリル)チオフエン、4, 4'-ビス(2-ベンゾオキサゾリル)ビフェニル、5-メチル-2-[2-[4-(5-メチル-2-ベンゾオキサゾリル)フェニル]ビニル]ベンゾオキサゾール、2-[2-(4-クロロフェニル)ビニル]ナフト[1, 2-d]オキサゾール等のベンゾオキサゾール系、2-2'-(*p*-フェニレンジビニレン)-ビスベンゾチアゾール等のベンゾチアゾール系、2-[2-[4-(2-ベンゾイミダゾリル)フェニル]ビニル]ベンゾイミダゾール、2-[2-(4-カルボキシフェニル)ビニル]ベンゾイミダゾール等のベンゾイミダゾール系等の蛍光増白剤を挙げることができる。さらに、他の有用な化合物は、ケミストリー・オブ・シンセティック・ダイズ1971, 628~637頁および640頁に列挙されている。

【0054】前記キレート化オキシノイド化合物としては、例えば特開昭63-295695号公報に開示されているものを用いることができる。その代表例としては、トリス(8-キノリノール)アルミニウム、ビス(8-キノリノール)マグネシウム、ビス(ベンゾ[f]-8-キノリノール)亜鉛、ビス(2-メチル-8-キノリノール)アルミニウムオキシド、トリス(8-キノリノール)インジウム、トリス(5-メチル-8-キノリノール)アルミニウム、8-キノリノールリチウム、トリス(5-クロロ-8-キノリノール)ガ

リウム、ビス(5-クロロ-8-キノリノール)カルシウム、ポリ[亜鉛(II)-ビス(8-ヒドロキシ-5-キノリノール)メタン]等の8-ヒドロキシキノリン系金属錯体やジリチウムエビトリジオン等を挙げることができる。

【0055】また、前記スチリルベンゼン系化合物としては、例えば欧州特許第0319881号明細書や欧州特許第0373582号明細書に開示されているものを用いることができる。その代表例としては、1, 4-ビス(2-メチルスチリル)ベンゼン、1, 4-ビス(3-メチルスチリル)ベンゼン、1, 4-ビス(4-メチルスチリル)ベンゼン、ジスチリルベンゼン、1, 4-ビス(2-エチルスチリル)ベンゼン、1, 4-ビス(3-エチルスチリル)ベンゼン、1, 4-ビス(2-メチルスチリル)-2-メチルベンゼン、1, 4-ビス(2-メチルスチリル)-2-エチルベンゼン等を挙げることができる。

【0056】また、特開平2-252793号公報に開示されているジスチリルピラジン誘導体も発光層の材料として用いることができる。その代表例としては、2, 5-ビス(4-メチルスチリル)ピラジン、2, 5-ビス(4-エチルスチリル)ピラジン、2, 5-ビス[2-(1-ナフチル)ビニル]ピラジン、2, 5-ビス(4-メトキシスチリル)ピラジン、2, 5-ビス[2-(4-ビフェニル)ビニル]ピラジン、2, 5-ビス[2-(1-ビレニル)ビニル]ピラジン等を挙げることができる。その他のものとして、例えば欧州特許第0387715号明細書に開示されているポリフェニル系化合物も発光層の材料として用いることもできる。

【0057】さらに、上述した蛍光増白剤、金属キレート化オキシノイド化合物、およびスチリルベンゼン系化合物等以外に、例えば1,2-フタロペリノン(J. Appl. Phys., 第27巻, L713(1988年))、1, 4-ジフェニル-1, 3-ブタジエン、1, 1, 4, 4-テトラフェニル-1, 3-ブタジエン(以上Appl. Phys. Lett., 第56巻, L799(1990年))、ナフタリイミド誘導体(特開平2-305886号公報)、ペリレン誘導体(特開平2-189890号公報)、オキサジアゾール誘導体(特開平2-216791号公報、または第38回応用物理学関係連合講演会で浜田らによって開示されたオキサジアゾール誘導体)、アルダジン誘導体(特開平2-220393号公報)、ピラジリン誘導体(特開平2-220394号公報)、シクロペンタジエン誘導体(特開平2-289675号公報)、ピロピロール誘導体(特開平2-296891号公報)、スチリルアミン誘導体(Appl. Phys. Lett., 第56巻, L799(1990年))、クマリン系化合物(特開平2-191694号公報)、国際公開公報WO90/13148やAppl. Phys. Lett., vol 58, 18, P1982(1991)に記載されているような高分子化合物等も、発光層の材

料として用いることができる。

【0058】本発明では、特に発光層の材料として、芳香族ジメチリデン系化合物(欧州特許第0388768号明細書や特開平3-231970号公報に開示のもの)を用いることが好ましい。具体例としては、1, 4-フェニレンジメチリデン、4, 4'-フェニレンジメチリデン、2, 5-キシレンジメチリデン、2, 6-ナフチレンジメチリデン、1, 4-ビフェニレンジメチリデン、1, 4-p-テレフェニレンジメチリデン、9, 10-アントラセンジイルジルメチリデン、4, 4'-ビス(2, 2-ジ-tert-ブチルフェニルビニル)ビフェニル、(以下、DTBPBiと略記する)、4, 4'-ビス(2, 2-ジフェニルビニル)ビフェニル(以下DPVBiと略記する)等、およびそれらの誘導体を挙げることができる。

【0059】さらに、特開平5-258862号公報等に記載されている一般式(R, -Q, -AL-O-Lであらわされる化合物も挙げられる。)

(上記式中、Lはフェニル部分を不運でなる炭素原子6~24個の炭化水素であり、O-Lはフェニレート配位子であり、Qは置換8-キノリノレート配位子を表し、R, はアルミニウム原子に置換8-キノリノレート配位子が2個上回り結合するのを立体的に妨害するように選ばれた8-キノリノレート環置換基を表す) 具体的には、ビス(2-メチル-8-キノリノレート)(パラフェニルフェノレート)アルミニウム(III)(以下PC-7)、ビス(2-メチル-8-キノリノレート)

(1-ナフトレート)アルミニウム(III)(以下PC-17)等が挙げられる。その他、特開平6-9953号公報等によるドーピングを用いた高効率の青色と緑色の混合発光を得る方法が挙げられる。この場合、ホストとしては上記に記載した発光材料、ドーパントとしては、青色から緑色にまでの強い蛍光色素、例えばクマリン系あるいは上記記載のホストとして用いられているものと同様な蛍光色素を挙げることができる。具体的には、ホストとしてジスチリルアリーレン骨格の発光材料、特に好ましくは例えばDPVBi、ドーパントとしてはジフェニルアミノビニルアリーレン、特に好ましくは例えばN, N-ジフェニルアミノビニルベンゼン(DPAVB)を挙げることができる。

【0060】白色の発光を得る発光層としては、特に制限はないが下記のものを用いることができる。

①有機EL積層構造体の各層のエネルギー準位を規定し、トンネル注入を利用して発光させるもの(ヨーロッパ公開特許第0390551号公報)

②①と同じくトンネル注入を利用する素子で実施例として白色発光素子が記載されているもの(特開平3-230584号公報)

③二層構造の発光層が記載されているもの(特開平2-220390号公報および特開平2-216790号公

報)

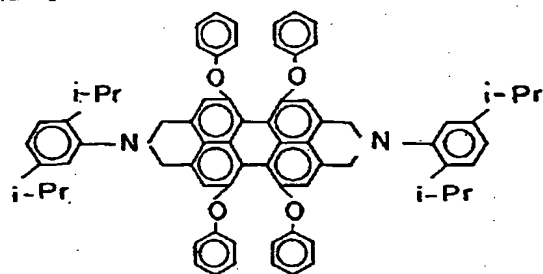
④発光層を複数に分割してそれぞれ発光波長の異なる材料で構成されたもの(特開平4-51491号公報)

⑤青色発光体(蛍光ピーク380nm~480nm)と緑色発光体(480nm~580nm)とを積層させ、さらに赤色発光体を含有させた構成のもの(特開平6-207170号公報)

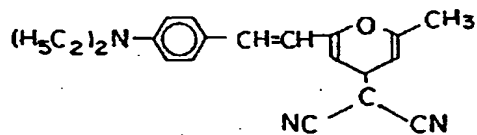
⑥青色発光層が青色蛍光色素を含有し、緑色発光層が赤色蛍光色素を含有した領域を有し、さらに緑色発光体を含有する構成のもの(特開平7-142169号公報)中でも、⑤の構成のものが好ましく用いられる。また、赤色の発光を得る赤色発光体の例を[化8]に示す。

【0061】

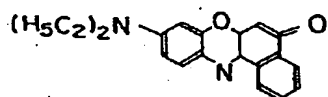
[化8]



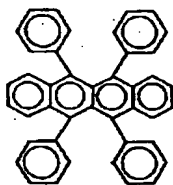
(ルモゲンフレッド)



(ジシアノメチレンピラン)



(フェノキサジン)



(ルブレン)

【0062】前記材料を用いて、発光層を形成する方法としては、例えば蒸着法、スピンコート法、LB法等の公知の方法を適用することができる。発光層は、特に分子堆積膜であることが好ましい。ここで分子堆積膜とは、気相状態の材料化合物から沈着され形成された薄膜や、溶液状態または液相状態の材料化合物から固体化され形成された膜のことであり、通常この分子堆積膜は、LB法により形成された薄膜(分子累積膜)とは凝集構

造、高次構造の相違や、それ起因する機能的な相違により区分することができる。また、特開昭57-51781号公報に開示されているように、樹脂等の結着剤と材料化合物とを溶剤に溶かして溶液とした後、これをスピンコート法等により薄膜化することによっても、発光層を形成することができる。このようにして、形成される発光層の膜厚については特に制限はなく、状況に応じて適宜選択することができる、通常5nm~5μmの範囲が好ましい。有機EL素子の発光層は以下の機能を併せ持つものである。すなわち、①注入機能；電界印加時に陽極または正孔注入層より正孔を注入することができ、陰極または電子注入層より電子を注入することができる機能、②輸送機能；注入した電荷(電子と正孔)を電界の力で移動させる機能、③発光機能；電子と正孔の再結合の場を提供し、これを発光につなげる機能、がある。但し、正孔の注入されやすさと電子の注入されやすさに違いがあってもよく、また正孔と電子の移動度であらわされる輸送能に大小があてもよいが、どちらか一方の電荷を移動することが好ましい。

【0063】(4)-2. 正孔注入層

次に、正孔注入層は、必ずしも本発明に用いられる素子に必要なものではないが、発光性能の向上のために用いた方が好ましいものである。この正孔注入層は発光層への正孔注入を助ける層であって、正孔移動度が大きく、イオン化エネルギーが、通常5.5eV以下と小さい。このような正孔注入層としては、より低い電界で正孔を発光層に輸送する材料が好ましく、さらに正孔の移動度が、例えば $10^4 \sim 10^6$  V/cmの電界印加時に、少なくとも $10^{-6}$  cm<sup>2</sup>/V・秒であればなお好ましい。このような正孔注入材料については、前記の好ましい性質を有するものであれば特に制限はなく、従来、光導伝材料において、正孔の電荷輸送材として慣用されているものや、EL素子の正孔注入層に使用される公知のものの中から任意のものを選択して用いることができる。

【0064】具体例としては、例えばトリアゾール誘導体(米国特許3,112,197号明細書等参照)、オキサジアゾール誘導体(米国特許3,189,447号明細書等参照)、イミダゾール誘導体(特公昭37-16096号公報等参照)、ポリアリールアルカン誘導体(米国特許3,615,402号明細書、同第3,820,989号明細書、同第3,542,544号明細書、特公昭45-5555号公報、同51-10983号公報、特開昭51-93224号公報、同55-17105号公報、同56-4148号公報、同55-108667号公報、同55-156953号公報、同56-36656号公報等参照)、ピラゾリン誘導体およびピラズロン誘導体(米国特許第3,180,729号明細書、同第4,278,746号明細書、特開昭55-88064号公報、同55-88065号公報、同49-105537号公報、同55-51086号公報、同5

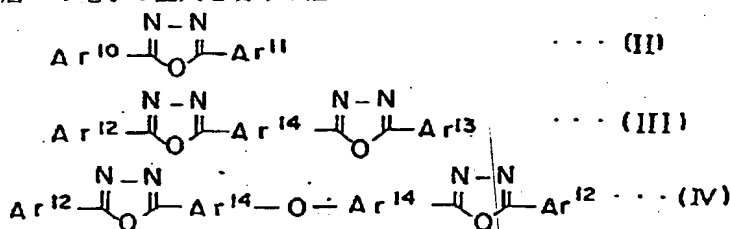
6-80051号公報、同56-88141号公報、同57-45545号公報、同54-112637号公報、同55-74546号公報等参照)、フェニレンジアミン誘導体(米国特許第3,615,404号明細書、特公昭51-10105号公報、同46-3712号公報、同47-25336号公報、特開昭54-53435号公報、同54-110536号公報、同54-119925号公報等参照)、アリールアミン誘導体(米国特許第3,567,450号明細書、同第3,180,703号明細書、同第3,240,597号明細書、同第3,658,520号明細書、同第4,232,103号明細書、同第4,175,961号明細書、同第4,012,376号明細書、特公昭49-35702号公報、同39-27577号公報、特開昭55-144250号公報、同56-119132号公報、同56-22437号公報、西独特許第1,110,518号明細書等参照)、アミノ置換カルコン誘導体(米国特許第3,526,501号明細書等参照)、オキサゾール誘導体(米国特許第3,257,203号明細書等に掲載のもの)、スチリルアントラセン誘導体(特開昭56-46234号公報等参照)、フルオレノン誘導体(特開昭54-110837号公報等参照)、ヒドラゾン誘導体(米国特許第3,717,462号明細書、特開昭54-59143号公報、同55-52063号公報、同55-52064号公報、同55-46760号公報、同55-85495号公報、同57-11350号公報、同57-148749号公報、特開平2-311591号公報等参照)、スチルベン誘導体(特開昭61-210363号公報、同61-228451号公報、同61-14642号公報、同61-72255号公報、同62-47646号公報、同62-36674号公報、同62-10652号公報、同62-30255号公報、同60-93445号公報、同60-94462号公報、同60-174749号公報、同60-175052号公報等参照)、シラザン誘導体(米国特許第4,950,950号明細書)、ポリシラン系(特開平2-204996号公報)、アニリン系重合体(特開平2-282263号公報)、特開平1-211399号公報に開示されている導電性高分子オリゴマー(特にチオフェンオリゴマー)等を挙げることができる。正孔注入層の材料としては上記のものを使用することができるが、ポルフィリン化合物(特開昭63-2956965号公報等に掲載のもの)、芳香族第三級アミン化合物およびスチリルアミン化合物(米国特許第4,127,412号明細書、特開昭53-27033号公報、同54-58445号公報、同54-149634号公報、同54-64299号公報、同55-79450号公報、同55-144250号公報、同56-119132号公報、同61-295558号公報、同61-98353号公報、同63-295695号公報

等参照)、特に芳香族第三級アミン化合物を用いることが好ましい。上記ポルフィリン化合物の代表例としては、ポルフィン、1,10,15,20-テトラフェニル-21H,23H-ポルフィン銅(II)、1,10,15,20-テトラフェニル-21H,23H-ポルフィン亜鉛(II)、5,10,15,20-テトラキス(ペンタフルオロフェニル)-21H,23H-ポルフィン、シリコンフタロシアニンオキシド、アルミニウムフタロシアニクロリド、フタロシアニン(無金属)、ジリチウムフタロシアニン、銅テトラメチルフタロシアニン、銅フタロシアニン、クロムフタロシアニン、亜鉛フタロシアニン、鉛フタロシアニン、チタニウムフタロシアニンオキシド、Mgフタロシアニン、銅オクタメチルフタロシアニン等を挙げることができる。また、前記芳香族第三級アミン化合物およびスチリルアミン化合物の代表例としては、N,N,N',N'-テトラフェニル-4,4'-ジアミノフェニル、N,N'-ジフェニル-N,N'-ビス-(3-メチルフェニル)-[1,1'-ビフェニル]-4,4'-ジアミン(以下TPDと略記する)、2,2-ビス(4-ジ-p-トリルアミノフェニル)プロパン、1,1-ビス(4-ジ-p-トリルアミノフェニル)シクロヘキサン、N,N,N',N'-テトラ-p-トリル-4,4'-ジアミノフェニル、1,1-ビス(4-ジ-p-トリルアミノフェニル)-4-フェニルシクロヘキサン、ビス(4-ジメチルアミノ-2-メチルフェニル)フェニルメタン、ビス(4-ジ-p-トリルアミノフェニル)フェニルメタン、N,N'-ジフェニル-N,N'-ジ(4-メトキシフェニル)-4,4'-ジアミノビフェニル、N,N,N',N'-テトラフェニル-4,4'-ジアミノフェニルエーテル、4,4'-ビス(ジフェニルアミノ)クオードリフェニル、N,N,N'-トリ(p-トリル)アミン、4-(ジ-p-トリルアミノ)-4'-[4(ジ-p-トリルアミノ)スチリル]スチルベン、4-N,N'-ジフェニルアミノ-(2-ジフェニルビニル)ベンゼン、3-メトキシ-4'-N,N'-ジフェニルアミノスチルベンゼン、N-フェニルカルバゾール、米国特許第5,061,569号に記載されている2個の縮合芳香族環を分子内に有する、例えば、4,4'-ビス[N-(1-ナフチル)-N-フェニルアミノ]ビフェニル(以下NPDAと略記する)、また、特開平4-308688号公報に記載されているトリフェニルアミンユニットが3つスターバースト型に連結された4,4',4''-トリス[N-(3-メチルフェニル)-N-フェニルアミノ]トリフェニルアミン(以下MTDATaと略記する)等を挙げることができる。また、発光層の材料として示した前述の芳香族ジメチリデン系化合物の他、p型-Si、p型SiC等の無機化合物も正孔注入層の材料として使用することができる。正孔注入層は、上述した化合物を、例えば真空蒸着法、スピノ

ート法、キャスト法、LB法等の公知の方法により薄膜化することにより形成することができる。正孔注入層としての膜厚は、特に制限はないが、通常は5nm～5μmである。この正孔注入層は、上述した材料の一種または二種以上からなる一層で構成されていてもよいし、または、前記正孔注入層とは別種の化合物からなる正孔注入層を積層したものであってもよい。また、有機半導体層は、発光層への正孔注入または電子注入を助ける層であって、 $10^{-10}$  S/cm以上の導電率を有するものが好適である。このような有機半導体層の材料としては、  
10 含チオフェンオリゴマーや含アリールアミンオリゴマーなどの導電性オリゴマー、含アリールアミンデンドリマーなどの導電性デンドリマーなどを用いることができる。

#### 【0065】(4)-3電子注入層

一方電子注入層は、発光層への電子の注入を助ける層で



【0067】(式中Ar<sup>10</sup>～Ar<sup>13</sup>はそれぞれ置換または無置換のアリール基を示し、Ar<sup>10</sup>とAr<sup>11</sup>およびAr<sup>12</sup>とAr<sup>13</sup>はそれぞれにおいて互いに同一であっても異なってもよく、Ar<sup>14</sup>置換または無置換のアリレン基を示す。)で表わされる電子伝達化合物が挙げられる。ここで、アリール基としてはフェニル基、ピフェニル基、アントラニル基、ペリレニル基、ピレニル基などが挙げられ、アリレン基としてはフェニレン基、ナフチレン基、ピフェニレン基、アントラセニレン基、ペ

あって、電子移動度が大きく、また付着改善層は、この電子注入層の中で、特に陰極との付着が良い材料からなる層である。電子注入層に用いられる材料としては、例えば8-ヒドロキシキノリンまたはその誘導体の金属錯体、あるいはオキサジアゾール誘導体が好ましく挙げられる。また、付着改善層に用いられる材料としては、特に8-ヒドロキシキノリンまたはその誘導体の金属錯体が好適である。上記8-ヒドロキシキノリンまたはその誘導体の金属錯体の具体例としては、オキシシ(一般に8-キノリノールまたは8-ヒドロキシキノリン)のキレートを含む金属キレートオキシノイド化合物が挙げられる。一方、オキサジアゾール誘導体としては、一般式

(II), (III) および (IV)

【0066】

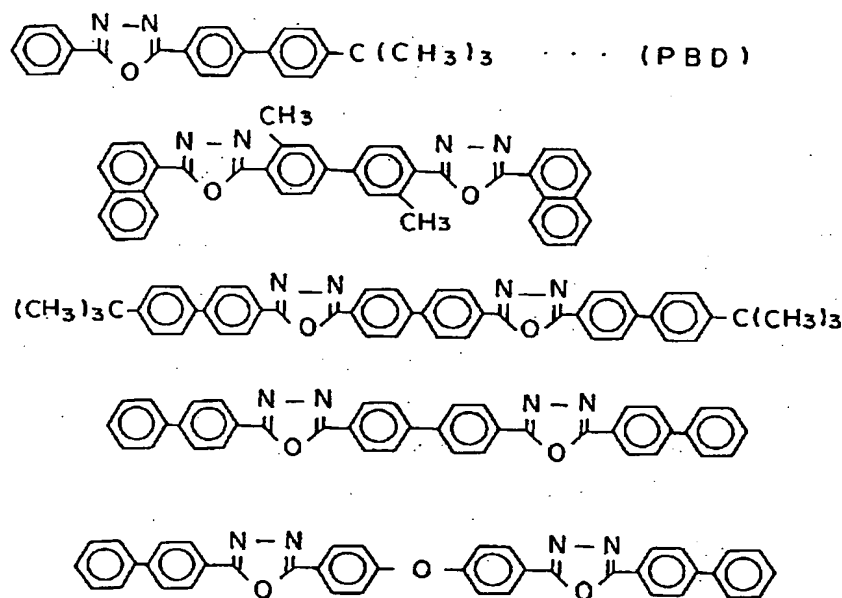
【化9】

ニレニレン基、ピレニレン基などが挙げられる。また、置換基としては炭素数1～10のアルキル基、炭素数1～10のアルコキシ基またはシアノ基などが挙げられる。この電子伝達化合物は、薄膜形成性のものが好ましい。上記電子伝達化合物の具体例としては、下記のものを挙げることができる。

【0068】

【化10】





#### 【0069】(4) - 4. 下部電極

有機EL素子の下部電極として陽極または陰極が設けられる。陽極としては高仕事関数の金属または透明電極が好ましい。好ましい例としては、ITO, In-Zn-O, SnO<sub>2</sub>:Sb, ZnO:Alなどの透明酸化物電極が挙げられる。他の好ましい例としては、Pt, Au, Ni等が挙げられるが、Pt, Au等は付着が弱いのでAu/高融点金属の組み合わせを用いることが好ましい。ここで高融点金属の好適例としては、Mo, W, Cr, Taなどを挙げることができる。Au/Al, Pt/Al, An/Al合金, Pt/Al合金なども好適例として挙げることができる。

【0070】陰極としては、ホウ化金属(LaB<sub>6</sub>, など), 希土類金属のケイ素化物, TiNなどの低仕事関数金属化合物が好適例として挙げることができる。Mg:Ag, Al:Liなど従来用いられてきた金属合金は耐食性に劣り下部電極として用いるのは必ずしも適切ではない。

#### 【0071】(4) - 5. 対向電極

本発明の特徴、すなわち高開口率を実現するには、図1に示すように対向電極33から光を取り出すのが好ましい。このためには、透明性好ましくは光線透過率が30%以上の透明電極である必要がある。対向電極で陽極である場合にはITO(In-Sn-O), In-Zn-O, SnO<sub>2</sub>:Sb, ZnO:Alなどを好ましく用いることができる。

【0072】陽極ではなく陰極の場合は、アルカリ金属またはアルカリ土類金属を0.1~5モル%で含有する合金膜であって膜厚が15nm以下のものは光線透過率を持つため好ましく用いることができる。合金の母体と

しては、Al, In, Zn, Pb, Biなどを好ましく用いることができる。さらに上記合金薄膜上に透明電極であるITO, In-Zn-O, SnO<sub>2</sub>:S, ZnO:Alなどを積層するならば面抵抗値が20Ω/□以下となり比較的低抵抗となって好ましい。また、上記透明電極は、非晶質、例えばIn-Zn-Oであることが好ましい。なぜなら、非晶質は結晶粒界がないため、防湿性に優れ、陰極と有機層の界面にある活性なアルカリ金属またはアルカリ土類金属が酸化することを防止するからである。さらには非晶質導電性酸化物膜は室温基板にて20Ω/□以下の面抵抗値が得られる。結晶性であるITOは室温では高抵抗であり100Ω/□程度である。

【0073】透明電極が積層されている場合には、上記合金膜は層をなして連続膜でなくても良く、島状の不連続膜であっても、電極全体に導電するため用いることができる。

#### 【0074】(4) - 6. 有機EL素子の作製(例)

以上例示した材料および方法により発光層、透明電極(陽極)、必要に応じて正孔注入層、および必要に応じて電子注入層を形成し、さらに電極(陰極)を形成することにより、有機EL素子を作製することができる。また、電極から透明電極へ、前記と逆の順序で有機EL素子を作製することもできる。

【0075】以下に支持基板上に透明電極/正孔注入層/発光層/電子注入層/電極が順次設けられた構成の有機EL素子の作製例を記載する。まず、適当な基板上に、透明電極材料からなる薄膜を1μm以下、好ましくは10~200nmの範囲の膜厚になるように蒸着やスパッタリング等の方法により形成して、透明電極を作製する。次に、この透明電極上に正孔注入層を設ける。正

孔注入層の形成は、前述したように真空蒸着法、スパインコート法、キャスト法、LB法等の方法により行なうことができるが、均質な膜が得られやすく、かつピンホールが発生しにくい等の点から、真空蒸着法により形成することが好ましい。真空蒸着法により正孔注入層を形成する場合、その蒸着条件は、使用する化合物（正孔注入層の材料）、目的とする正孔注入層の結晶構造や再結合構造等により異なるが、一般に蒸着源温度50～450℃、真空度 $10^{-1} \sim 10^{-3}$  torr、蒸着速度0.01～50 nm/sec、基板温度-50～300℃、膜厚5 nm～5 μmの範囲で適宜選択することが好ましい。

【0076】次に正孔注入層上に発光層を設ける発光層の形成も、所望の有機発光材料を用いて、真空蒸着法、スパッタリング、スパインコート法、キャスト法等の方法により有機発光材料を薄膜化することにより形成できるが、均質な膜が得られやすく、かつピンホールが生成しにくい等の点から、真空蒸着法により形成することが好ましい。真空蒸着法により発光層を形成する場合、その蒸着条件は、使用する化合物により異なるが、一般的に正孔注入層と同じ様な条件範囲の中から選択することができる。

【0077】次に、この発光層上に電子注入層を設ける。正孔注入層、発光層と同様、均質な膜を得る必要から真空蒸着法により形成することが好ましい。蒸着条件は、正孔注入層、発光層と同様条件範囲から選択することができる。

【0078】最後に、電極を積層して有機EL素子を得ることができる。電極は、金属から構成されるもので、蒸着法、スパッタリングを用いることができる。しかし、下地の有機物層を成膜時の損傷から守るためには、真空蒸着法が好ましい。

【0079】これまで記載してきた有機EL素子の作製は、一回の真空引きで一貫して透明電極から電極まで作製することが好ましい。

【0080】なお、有機EL素子に直流電圧を印加する場合、透明電極を+、電極を-の極性にして、5～40 Vの電圧を印加すると、発光が観測できる。また、逆の極性で電圧を印加しても電流は流れず、発光は全く生じない。さらに交流電圧を印加した場合には、透明電極が+、電極が-の極性になったときのみ均一な発光が観測される。印加する交流の波形は任意でよい。ここで、平面的に分離配置して発光する有機EL素子を作製するには、ストライプ状の透明電極および電極を交差させ、それぞれの電極に直流電圧を印加し、交差部分を発光させるX-Yドットマトリックス方式と透明電極または電極のいずれかをドット状に形成し、TFT (Thin Film Transister) のようなスイッチング素子にて特定のドット部分だけに直流電圧を印加して発光させるアクティブマトリックス方式が挙げられる。例えば、ストライプ状の透明電極および電極はフォトリソグラフィ法にてエッ

ティングするリフトオフするか、またはマスク蒸着等の方法にて形成することができる。

【0081】【実施例】以下、本発明を実施例によってさらに具体的に説明する。

#### 【実施例1】

(アクティブマトリックス基板の作製) ガラス基板(白板ガラス)上にSi, H<sub>2</sub>をガスとしてLPCVDを用いて膜厚50 nmのα-Si膜を成膜した。基板温度は450℃であった。次に、XeClエキシマレーザーを走掃しアニーリングを行なった。第一段目に188 mJ/cm<sup>2</sup>の照射エネルギーで、第二段目を290 mJ/cm<sup>2</sup>の照射エネルギーで行なった。これによりα-Siをポリシリコンに変化させた。次に、ポリSi島を所定のパターンで設けた。エッチングはCF<sub>4</sub>をガス種として行なった。次に、ゲート絶縁膜であるSiO<sub>2</sub>をECRCVDで基板温度200℃で膜厚100 nm成膜した。次に、ゲート電極としてTa<sub>2</sub>N(60 μΩ・cmの比抵抗値)をスパッタリングにより成膜し、パターンニングした。同時にゲートバスもパターン加工した。また、コンデンサーの下部電極を加工した。次に、イオン注入によりドレインとソース領域に4×10<sup>15</sup> イオン/cm<sup>2</sup>、エネルギー80 keVのPイオンを注入した。次に、基板を不活性N<sub>2</sub>の中で300℃、3時間熱し、イオンを活性化し、ドーピングが有効に行なわれるようにした。ポリシリコンのイオン注入された組成は2 kΩ/□の面抵抗値となり活性化された。次に、絶縁層として、ECRCVDでSiO<sub>2</sub>を成膜した。膜厚は300 nmであった。次に、ソースバス(信号ライン)を製膜した。Alをスパッタリングし膜厚200 nm設けてあり、同時に図2で示された共通電極線、コンデンサーの上部電極、Tr2のソースと共通電極ラインの連結、Tr1のソースと信号ラインの連結もパターン加工した。なお、必要なコンタクトホールはあらかじめSiO<sub>2</sub>に開口させておいた。次に、SiO<sub>2</sub>をECRCVD法によって600 nmの膜厚で積層した。次に、フォトレジストを3 μmの膜厚で全面上にスパインコートし覆った。次に、RIEにてガス種をCF<sub>4</sub>/O<sub>2</sub>としてエッチバック法にて最上部のSiO<sub>2</sub>を平坦化した。次に、Tr2のドレイン部を開口し、さらにAl:Si(Si 1重量%)の合金を膜厚50 nm成膜し、さらにITO(Sn 10重量%)を膜厚50 nm製膜した。このときの基板温度は200℃であった。触針膜厚計にてAl:SiおよびITOの成膜前のSiO<sub>2</sub>の平坦度を調べたところ0.15 μm以下であった。これにより、Al:SiおよびITOは断線することなく、ポリSi, Tr1, Tr2の上に設けることができた。これは、本発明の顕著な効果である。なお、本実施例の画素の大きさは250 μm×100 μmであり、これに対しITOの大きさは有効な発光画素の大きさを与えるが240 μm×90 μmであった。Tr1, Tr2, ゲート, ソースおよび

共通電極線上有機ELの下部電極を備えているので極めて大きな86%の開口率が得られた。

【0082】(有機EL層および対向電極の作製) 上記で得られたアクティブマトリックス基板をイソプロピルアルコール中で超音波洗浄を1分間行なった。次に、この基板上に膜厚80nmの4, 4'-ビス[N, N-ジ(3-メチルフェニル)アミノ]-4''-フェニルトリフェニルアミン膜(以下「TPD74膜」と略記する。)を製膜した。このTPD74膜は、第1の正孔注入層として機能する。このTPD74膜の成膜に続けて、このTPD74膜上に膜厚20nmの4, 4'-ビス[N-(1-ナフチル)-N-フェニルアミノ]ビフェニル膜(以下「NPD膜」と略記する。)を成膜した。このNPD膜は、第2の正孔注入層(正孔輸送層)として機能する。さらに、NPD膜の成膜に続けて、このNPD膜上に膜厚40nmの4, 4'-ビス(2, 2-ジフェニルビニル)ビフェニル膜(以下「DPVBi膜」と略記する。)を成膜した。このDPVBi膜は、青色発光層として機能する。そして、DPVBi膜の成膜に続けて、このDPVBi膜上に膜厚20nmのトリ

ス(8-キノリノール)アルミニウム膜(以下「Alq膜」と略記する。)を成膜した。このAlq膜は、電子注入層として機能する。次に、MgとAgの合金膜を蒸着した。2元蒸着方法を用い蒸着レートを1.4nm:0.1nmに設定し膜厚10nm蒸着した。次に、スパッタリングにてIn-Zn-O膜を200nm成膜した。In-Zn-O膜は非晶質酸化物膜であり、In/(In+Zn)=0.83であるIn-Zn-O系スパッタリングターゲットを用い、Ar:O<sub>2</sub>の混合ガスを雰囲気として真空0.2Pa、スパッタリング出力2w/cm<sup>2</sup>の条件で行なった。Mg:Ag/In-Zn-O積層膜は陰極として機能し、その透過率は65%であった。

【0083】(作動テスト) 上記で得られた発光装置の作動テストを行なった。テストパターンが100cd/m<sup>2</sup>の輝度で青色にて出力されているのを確認した。平坦化した絶縁膜上に下部電極を備えているので、開口率が大きく画像表示において画素のドットの境界が目立つことなく自然な表示がされ、また画素欠陥が少なく全面素数(320×240)のうち1%以下であった。

【0084】[比較例1] 実施例1において、最上部のSiO<sub>2</sub>は平坦化せずにAl:Si/ITOの下部電極を成膜したこと以外は実施例1と同様にして有機EL発光装置を作製した。ただし、この発光装置を試験したところ画素欠陥は10%を越えていた。欠陥のある画素を詳細に観察したところTr1, Tr2が設けられているところで短絡が生じているかまたは電極の断線により発光していないことが観察された。従って本発明の平坦化した下部電極下の絶縁膜は、有効であることが判明した。

【0085】[比較例2] 実施例1において、Al:Si/ITOの下部電極を、Tr1, Tr2の部分、ゲートバスの部分およびソースバスの部分を避けるようにしてパターン加工したこと以外は実施例1と同様にした。試験を行なったところ開口率は67%に低下しており、画素表示において画素ドットの境界が目立ち良好な表示が得られなかった。

【0086】

【発明の効果】 以上説明したように本発明によって、開口率が大きく、かつ画像欠陥の発生を有効に防止して、高品質の画像表示が可能な有機アクティブEL発光装置を提供することができる。

【図面の簡単な説明】

【図1】 本発明の有機アクティブEL発光装置の一実施形態を模式的に示す、図3のA-A線断面図である。

【図2】 本発明に用いられる有機EL素子の駆動回路を示す説明図である。

【図3】 本発明の有機アクティブEL発光装置の一実施形態を模式的に示す平面図である。

【図4】 本発明に用いられる薄膜トランジスターのポリシリコン層をアイランドにパター化する過程を模式的に示す断面図である。

【図5】 従来技術の有機TFTELにおける回路図である。

【図6】 図5におけるA-A'線の断面図である。

【図7】 従来技術の有機TFTELの他の例を示す断面図である。

【図8】 従来技術の有機TFTELの他の例を示す断面図である。

【符号の説明】

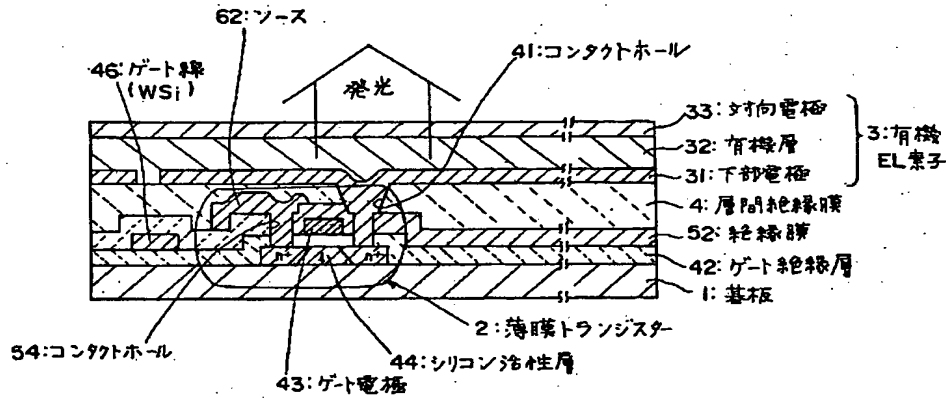
- 1 基板
- 2 薄膜トランジスター(TFT)
- 21 第一のトランジスター(Tr1)
- 22 第二のトランジスター(Tr2)
- 23 コンデンサー
- 3 有機EL素子
- 31 下部電極
- 32 有機層
- 33 対向電極
- 4 層間絶縁膜
- 41 コンタクトホール
- 42 ゲート絶縁層
- 43 ゲート電極
- 44 シリコン活性層
- 46 ゲート線
- 52 絶縁膜
- 54 コンタクトホール
- 62 ソース
- 70 ポリシリコン層
- 71 ポリシリコンアイランド

33  
72 ゲート絶縁層  
73 ポリシリコンゲート電極  
81 正孔注入電極

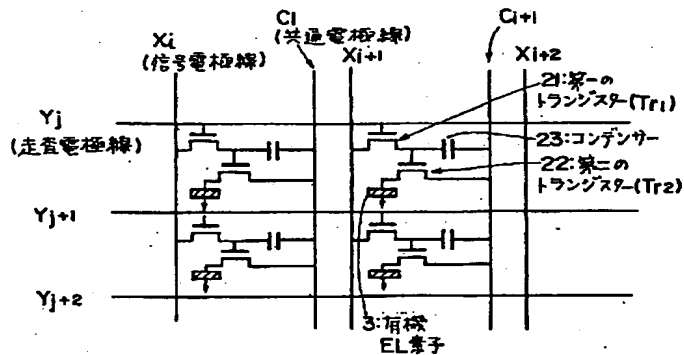
82 電子注入電極  
83 ゲート電極  
84 ソース電極

34

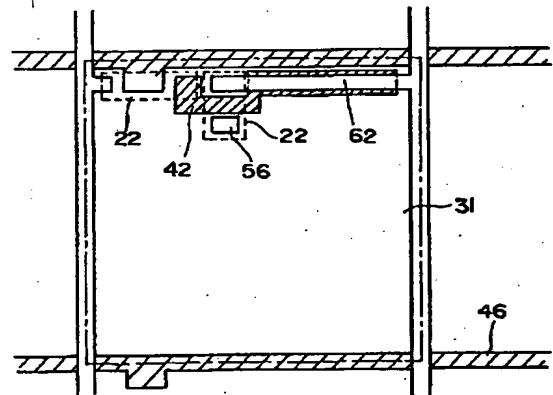
【図1】



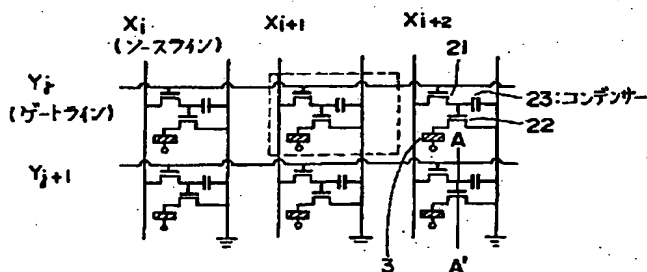
【図2】



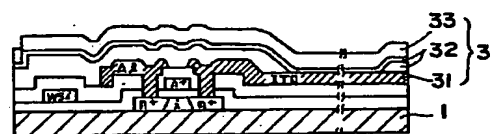
【図3】



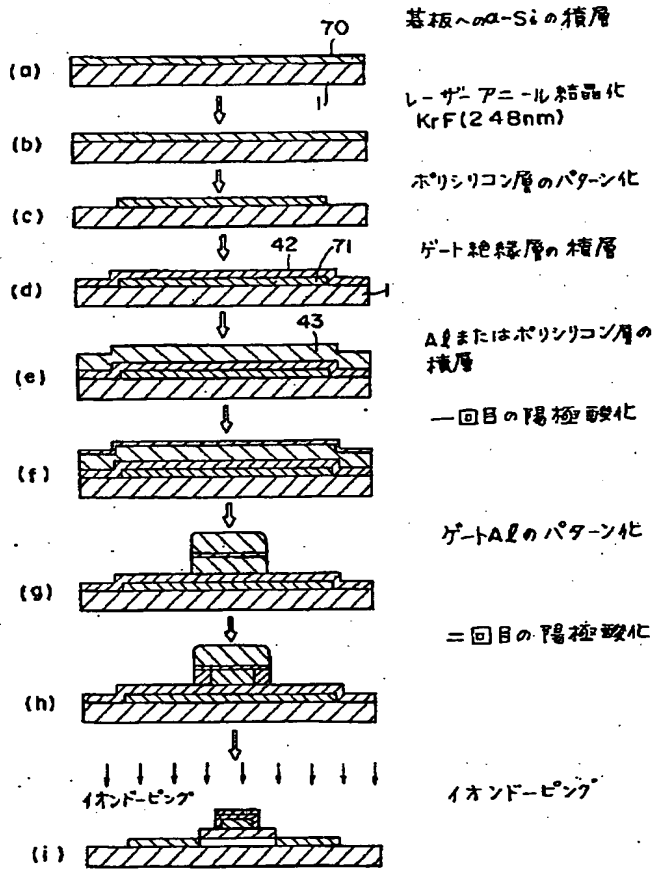
【図5】



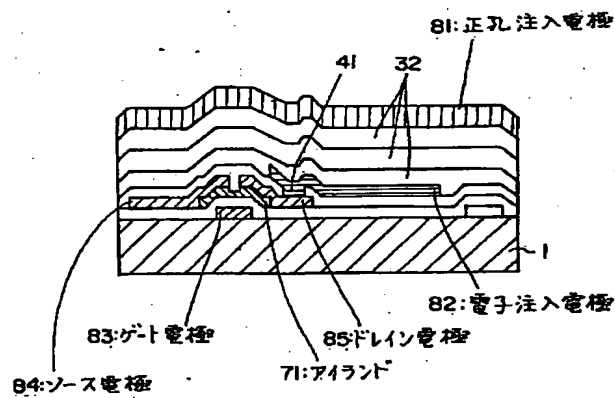
【図6】



【図4】



【図8】



【図7】

